



**PCT**  
WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales Büro  
INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

|   |    |   |
|---|----|---|
| (51) Internationale Patentklassifikation 6 :<br>B01D 53/90, 53/94 | A1 | (11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/55445<br>(43) Internationales<br>Veröffentlichungsdatum: 4. November 1999 (04.11.99) |
|---|----|---|

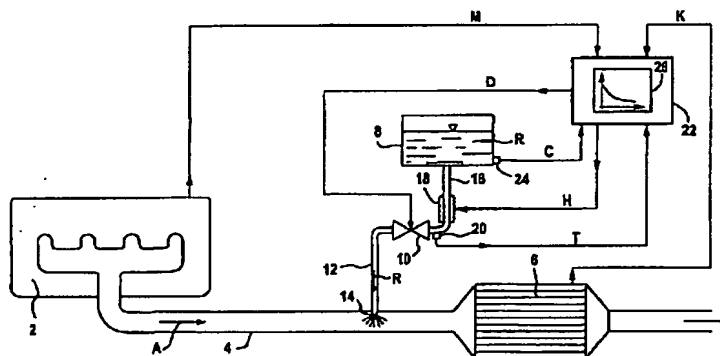
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE99/01097  
(22) Internationales Anmeldedatum: 12. April 1999 (12.04.99)  
(30) Prioritätsdaten: 198 18 448.4 24. April 1998 (24.04.98) DE  
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; Wittelsbacherplatz 2, D-80333 München (DE).  
(72) Erfinder; und  
(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): WISSLER, Gerhard [DE/DE]; Helmunistrasse 46, D-93104 Stünching (DE). PAJONK, Günther [DE/DE]; Hellerwiese 7, D-96199 Zapfendorf (DE). WEIGL, Manfred [DE/DE]; Breitenfeldstrasse 12, D-93161 Viehhausen (DE). HOFMANN, Lothar [DE/DE]; Klosterstrasse 48, D-96264 Altenkunstadt (DE).  
(74) Gemeinsamer Vertreter: SIEMENS AKTIENGESELLSCHAFT; Postfach 22 16 34, D-80506 München (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: JP, KR, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

Veröffentlicht  
Mit internationalem Recherchenbericht.  
Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

(54) Title: METHOD AND DEVICE FOR CATALYTIC REDUCTION OF NITROGEN OXIDES IN THE WASTE GAS OF A COMBUSTION FACILITY

(54) Bezeichnung: VERFAHREN UND VORRICHTUNG ZUR KATALYTISCHEN REDUZIERUNG VON STICKOXIDEN IM ABGAS EINER VERBRENNUNGSANLAGE



(57) Abstract

In order to ensure as high a conversion as possible of nitrogen oxide in a DeNOx catalyst (6) in a waste gas purification facility while preventing the reducing agent used for reduction from escaping into the environment, the density of the reducing agent solution (R) is taken into account when determining the volume of said reducing agent solution. A two-fold control of the density is carried out by measuring the temperature of the reducing agent solution (R) using a temperature sensor (20) and by regulating it using a tempering device (18).

BEST AVAILABLE COPY

#### (57) Zusammenfassung

Um bei einer Abgasreinigungsanlage zur Stickoxidreduzierung eine möglichst hohe Umsetzung der Stickoxide in einem De-NOx-Katalysator (6) zu gewährleisten und gleichzeitig ein Entweichen des zur Reduktion verwendeten Reduktionsmittels in die Umwelt zu verhindern, ist vorgesehen, bei der Bestimmung des zu dosierenden Volumens einer Reduktionsmittellösung (R) deren Dichte heranzuziehen. Die Dichte wird dabei in zweifacher Weise kontrolliert, indem die Temperatur der Reduktionsmittellösung (R) zum einen über einen Temperatursensor (20) gemessen und zum anderen mittels einer Temperiereinrichtung (18) eingestellt wird.

#### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

|    |                              |    |                                   |    |   |    |                                |
|----|------------------------------|----|-----------------------------------|----|---|----|--------------------------------|
| AL | Albanien                     | ES | Spanien                           | LS | Lesotho   | SI | Slowenien                      |
| AM | Armenien                     | FI | Finnland                          | LT | Litauen   | SK | Slowakei                       |
| AT | Österreich                   | FR | Frankreich                        | LU | Luxemburg                                       | SN | Senegal                        |
| AU | Australien                   | GA | Gabun                             | LV | Lettland  | SZ | Swasiland                      |
| AZ | Aserbajdschan                | GB | Vereinigtes Königreich            | MC | Monaco  | TD | Tschad                         |
| BA | Bosnien-Herzegowina          | GE | Georgien                          | MD | Republik Moldau                                 | TG | Togo                           |
| BB | Barbados                     | GH | Ghana                             | MG | Madagaskar                                      | TJ | Tadschikistan                  |
| BE | Belgien                      | GN | Guinea                            | MK | Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien | TM | Turkmenistan                   |
| BF | Burkina Faso                 | GR | Griechenland                      | ML | Mali  | TR | Türkei                         |
| BG | Bulgarien                    | HU | Ungarn                            | MN | Mongolei  | TT | Trinidad und Tobago            |
| BJ | Benin                        | IE | Irland                            | MR | Mauretanien                                     | UA | Ukraine                        |
| BR | Brasilien                    | IL | Israel                            | MW | Malawi  | UG | Uganda                         |
| BY | Belarus                      | IS | Island                            | MX | Mexiko  | US | Vereinigte Staaten von Amerika |
| CA | Kanada                       | IT | Italien                           | NE | Niger   | UZ | Usbekistan                     |
| CF | Zentralafrikanische Republik | JP | Japan                             | NL | Niederlande                                     | VN | Vietnam                        |
| CG | Kongo                        | KE | Kenia                             | NO | Norwegen  | YU | Jugoslawien                    |
| CH | Schweiz                      | KG | Kirgisistan                       | NZ | Neuseeland                                      | ZW | Zimbabwe                       |
| CI | Côte d'Ivoire                | KP | Demokratische Volksrepublik Korea | PL | Polen   |    |                                |
| CM | Kamerun                      | KR | Republik Korea                    | PT | Portugal  |    |                                |
| CN | China                        | KZ | Kasachstan                        | RO | Rumänien  |    |                                |
| CU | Kuba                         | LC | St. Lucia                         | RU | Russische Föderation                            |    |                                |
| CZ | Tschechische Republik        | LI | Liechtenstein                     | SD | Sudan   |    |                                |
| DE | Deutschland                  | LK | Sri Lanka                         | SE | Schweden  |    |                                |
| DK | Dänemark                     | LR | Liberia                           | SG | Singapur  |    |                                |
| EE | Estland                      |    |                                   |    |   |    |                                |

## Beschreibung

Verfahren und Vorrichtung zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas einer Verbrennungsanlage

5

Die Erfindung betrifft ein Verfahren und eine Vorrichtung zur katalytischen Umsetzung von Stickoxiden im Abgas einer Verbrennungsanlage, insbesondere im Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, beispielsweise eines Dieselmotors.

10

Bei der Verbrennung von fossilem Brennstoff wie Erdöl oder Kohle in einer Verbrennungsanlage, insbesondere von Dieselmotorkraftstoff in einem Dieselmotor, entstehen unter anderem für die Umwelt schädliche Stickoxide. Um den Eintrag von Stickoxiden in die Umwelt zu vermindern, ist unter anderem bei der Kraftwerkstechnik der Einsatz eines in der Abgasleitung einer Verbrennungsanlage angeordneten Katalysators bekannt. Der Katalysator dient zur katalytischen Umwandlung der im Abgas enthaltenen Stickoxide in unbedenkliche Stoffe.

20

Bei einem mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotor werden Stickoxide beispielsweise nach dem Verfahren der selektiven katalytischen Reduktion (SCR-Verfahren) aus dem Abgas entfernt. Dabei wird in das Abgas vor dem Durchströmen eines sogenannten SCR- oder DeNOx-Katalysators ein Reduktionsmittel eingebracht, das die im Abgas enthaltenen Stickoxide in Anwesenheit von Sauerstoff am Katalysator zu unschädlichem Stickstoff und Wasser umsetzt. Als Reduktionsmittel wird dabei in der Regel Ammoniak verwendet. Das Reduktionsmittel wird in das Abgas beispielsweise in Form einer Reduktionsmittellösung eingebracht, aus welcher das eigentliche Reduktionsmittel freigesetzt wird. Im Falle von Ammoniak ist eine solche Reduktionsmittellösung beispielsweise eine wäßrige Harnstofflösung. Siehe hierzu die Siemens-Firmenschrift: „SINOx, Stickoxidminderung für stationäre Dieselmotoren“, 1997, Best.-Nr. A96001-U91-A232.

30

35

Bei der Stickoxidminderung nach dem SCR-Verfahren muß stets eine an die aktuelle Stickoxidemission angepaßte Reduktionsmittelmenge in das Abgas eingebracht werden. Damit wird einerseits eine hohe Umsatzrate der Stickoxide am Katalysator erzielt, und andererseits wird vermieden, daß zuviel Reduktionsmittel eingebracht wird, welches dann den Katalysator zusammen mit dem Abgas verläßt und in die Umwelt gelangt. Der Austritt von Reduktionsmittel in die Umwelt wird auch als Schlupf bezeichnet. Er ist insbesondere bei Verwendung von Ammoniak zu vermeiden, um eine zusätzliche Belastung der Umwelt zu verhindern.

Die Ermittlung der pro Zeiteinheit einzubringenden Menge an Reduktionsmittel gestaltet sich insbesondere bei instationär betriebenen Verbrennungsanlagen schwierig. Solche instationär betriebene Verbrennungsanlagen sind beispielsweise im Kraftfahrzeugbereich eingesetzte Dieselmotoren, die mit häufigen Lastwechseln betrieben werden. Die Emission der Stickoxide kann daher innerhalb kurzer Zeitintervalle beträchtlich variieren. In Folge dessen ist es notwendig, daß auch die zudosierte Menge an Reduktionsmittel sehr schnell variiert und genau eingestellt wird. Die Menge des einzubringenden Reduktionsmittels ist also bedarfsabhängig zu steuern. Der aktuelle Bedarf wird dabei anhand von Parametern ermittelt, die den Betriebszustand der Verbrennungsanlage charakterisieren. Bei einem Dieselmotor sind solche Parameter beispielsweise Drehzahl, Drehmoment, Betriebstemperatur oder Kraftstoffverbrauch. Aus der DE-19 536 571 A1 ist es bekannt, zusätzlich Parameter hinzuzuziehen, die den Betriebszustand des Katalysators charakterisieren. Diese Parameter sind beispielsweise die Speicherkapazität des Katalysators für das Reduktionsmittel, die Betriebstemperatur oder die katalytische Aktivität des Katalysators.

Aus den verschiedenen Parametern wird beispielsweise anhand eines Kennfelds die für die Umsetzung der Stickoxide benötigte Menge an Reduktionsmittel ermittelt. Für die Bestimmung

des pro Zeiteinheit zuzudosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung sind bei der Verwendung einer Reduktionsmittellösung zudem deren Eigenschaften, beispielsweise deren Konzentration, mit zu berücksichtigen. In der Regel wird die  
5 Menge an Reduktionsmittel so bestimmt, daß dem Katalysator etwas weniger Reduktionsmittel zugeführt wird, als zur Umsetzung der Stickoxide notwendig ist, so daß Schlupf auf alle Fälle vermieden ist. Der Katalysator wird also unterhalb der theoretisch möglichen Umsatzrate betrieben. Die Umsatzrate  
10 gibt den Anteil der am Katalysator reduzierten Stickoxide an.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren und eine Vorrichtung zur katalytischen Umsetzung von im Abgas einer Verbrennungsanlage enthaltenen Stickoxiden anzugeben, wo-  
15 bei ein Schlupf des Reduktionsmittels sicher vermieden und gleichzeitig eine hohe Umsatzrate der Stickoxide am Katalysator erzielt wird.

Gemäß der Erfindung wird zur Lösung der Aufgabe bei dem Verfahren zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden, insbesondere von Stickoxiden im Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, ein Katalysator von dem Abgas durchströmt, vor dem Durchströmen des Katalysators wird in  
20 das Abgas eine Reduktionsmittellösung zudosiert und die pro Zeiteinheit zu dosierende Menge des gelösten Reduktionsmittels wird bedarfsabhängig bestimmt, wobei die Dichte der Reduktionsmittellösung zur Bestimmung des pro Zeiteinheit zu dosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung herangezogen  
25 wird.

30 Die Erfindung geht von der Überlegung aus, daß bei einer volumetrischen Dosierung der Reduktionsmittellösung die zudosierte Menge an Reduktionsmittel von der Dichte der Reduktionsmittellösung beeinflusst wird. Dichteschwankungen treten in  
35 erster Linie bei Temperaturänderungen auf. Mit der Einbeziehung der Dichte wird die durch Dichteschwankungen hervorgerufene Ungenauigkeit bei der Dosierung weitgehend verhindert

und eine hohe Dosiergenauigkeit erreicht. Dadurch wird die gewünschte Umsatzrate möglichst genau erzielt, ohne daß Schlupf auftritt.

- 5 Als Reduktionsmittellösung wird vorzugsweise eine wäßrige Harnstofflösung verwendet. Die Harnstofflösung wird in das heiße Abgas eindosiert. Dabei wird aus dem gelösten Harnstoff das eigentliche Reduktionsmittel, nämlich der Ammoniak, freigesetzt. Das Ammoniak gelangt zusammen mit den Stickoxiden in  
10 den Katalysator, wo es an der katalytisch aktiven Fläche die Stickoxide zu Stickstoff reduziert.

- Bevorzugt wird zur Bestimmung der Dichte die Temperatur der Reduktionsmittellösung gemessen und in Abhängigkeit von der  
15 aus der Temperatur abgeleiteten Dichte das zu dosierende Volumen der Reduktionsmittellösung gesteuert. Die Temperatur ist die wesentliche Bestimmungsgröße für die Dichte und kann in einfacher Weise durch gebräuchliche Temperatursensoren ermittelt werden. Da die Reduktionsmittellösung in flüssiger  
20 Form vorliegt und nahezu inkompressibel ist, ist die Dichte von Druckeinflüssen im wesentlichen unbeeinflußt.

- Die Temperaturmessung kann bereits in einem Vorratsbehälter für die Reduktionsmittellösung oder bevorzugt unmittelbar vor  
25 einer Dosiereinrichtung zur volumetrischen Dosierung der Reduktionsmittellösung erfolgen. Mit der Bestimmung der Temperatur unmittelbar vor der Dosiereinrichtung wird dabei eine höhere Genauigkeit erreicht, da die tatsächliche Temperatur der Reduktionsmittellösung am Ort der Dosiereinrichtung er-  
30 mittelt wird. Bei einer Temperaturmessung im oder am Vorratsbehälter können demgegenüber unter Umständen in einer zu der Dosiereinrichtung führenden Zuleitung Wärmeverluste auftreten, die bei der Ermittlung der Dichte zu berücksichtigen sind.

Das zu dosierende Volumen wird vorteilhafter Weise aus einer Kennlinie bestimmt, die die Abhängigkeit zwischen der Temperatur und der Dichte der Reduktionsmittellösung wiedergibt.

- 5 Das zu dosierende Volumen kann dadurch in einfacher Weise aus der Kennlinie abgelesen werden, und braucht nicht permanent rechnerisch ermittelt werden. Es ist daher ausreichend, die Temperatur-Dichte-Abhängigkeit nur einmal entweder experimen-
- 10 tell oder rechnerisch zu bestimmen. Es ist dabei von Vorteil, in einem Speicherelement mehrere Kennlinien für verschiedene Reduktionsmittellösungen abzulegen. Die Reduktionsmittellösungen können sich beispielsweise hinsichtlich ihrer Konzen-
- 15 tration oder ihrer Zusammensetzung unterscheiden. In der Regel wird als Reduktionsmittel Harnstoff und als Lösungsmittel Wasser verwendet.

In einer bevorzugten Weise wird die Reduktionsmittellösung temperiert, so daß ihre Dichte auf einen festgelegten Wert eingestellt wird, da bei einer vorgegebenen Temperatur die

20 Dichte definiert ist. Der Vorteil bei der direkten Temperierung der Reduktionsmittellösung ist darin zu sehen, daß die Dichte der Reduktionsmittellösung nicht durch eine gesonderte Messung, beispielsweise einer Temperaturmessung, bestimmt werden muß.

25 Die Temperierung der Reduktionsmittellösung erfolgt dabei entweder im Vorratsbehälter für die Reduktionsmittellösung oder unmittelbar vor der Dosiereinrichtung. Die Anordnung einer Temperiereinrichtung unmittelbar vor der Dosiereinrichtung bietet den Vorteil, daß die eventuell auftretenden Wärmeverluste durch Abstrahlung zwischen Temperiereinrichtung

30 und Dosiereinrichtung vernachlässigbar sind.

Die Temperierung der Reduktionsmittellösung ist neben der Bestimmung der Temperatur der Reduktionsmittellösung eine alternative oder zusätzliche Möglichkeit, um die Dichte der Reduktionsmittellösung zur Bestimmung des pro Zeiteinheit zu

35

dosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung heranzuziehen. Besonders vorteilhaft ist es, die beiden Möglichkeiten miteinander zu kombinieren, um eine hohe Dosiergenauigkeit zu erreichen. Durch die zusätzliche Messung der Temperatur wird  
5 eine höhere Genauigkeit bei der Kontrolle der Dichte erzielt. Dies kann insbesondere bei der Inbetriebnahme von Vorteil sein, wenn die Temperiereinrichtung die Reduktionsmittellösung noch nicht auf die vorgegebene Temperatur eingestellt hat.

10

Die Temperierung erfolgt bevorzugt mittels einer Temperiereinrichtung oder Heizung, und zwar insbesondere mittels eines NTC-Heizelements. Das NTC-Heizelement ist ein elektrisches Widerstands-Heizelement und dadurch charakterisiert, daß sein  
15 Widerstand einen negativen Temperaturkoeffizient (NTC) aufweist, d.h. sein Widerstand und damit seine Heizleistung nehmen mit zunehmender Temperatur ab. Das NTC-Heizelement ist also nahezu selbstregulierend, so daß sich damit in besonders einfacher Weise eine gewünschte Temperatur in der Reduktionsmittellösung erreichen läßt, ohne daß eine aufwendige Steuerung der Heizung erforderlich ist.

20

Das NTC-Heizelement wird zweckmäßigerweise zugleich als Temperatursensor eingesetzt. Hierzu wird der Widerstand des NTC-Heizelements bestimmt, der eine eindeutige Funktion der Temperatur ist. Somit kann durch ein einziges Element zugleich  
25 die Reduktionsmittellösung auf eine vorgegebene Temperatur aufgeheizt und die momentane Temperatur der Reduktionsmittellösung unmittelbar bestimmt werden.

30

In einer bevorzugten Ausgestaltung wird die Konzentration der Reduktionsmittellösung zur Bestimmung des zu dosierenden Volumens herangezogen. Die Konzentration der Reduktionsmittellösung ist generell eine wesentliche Bestimmungsgröße für das  
35 zu dosierende Volumen der Reduktionsmittellösung, da die Konzentration ein Maß für die tatsächlich gelöste Menge an Reduktionsmittel ist.



Da die Konzentration Schwankungen unterworfen sein kann, ist es zweckmäßig, zusätzlich zu der Dichte auch die Konzentration zu bestimmen oder zu kontrollieren. Die Schwankungen in der Konzentration werden beispielsweise durch Verdunstungseffekte oder beim Nachtanken aufgrund herstellungsbedingter Unterschiede bei verschiedenen Reduktionsmittellösungen hervorgerufen. Die Konzentration wird beispielsweise durch ein Meßglied überwacht oder wird alternativ oder zusätzlich durch aktive Kontrolle auf einen vorgebbaren Wert eingestellt. Zur aktiven Kontrolle wird die Reduktionsmittellösung beispielsweise auf eine vorgebbare Temperatur thermostatisiert. Sofern die Reduktionsmittellösung bei der vorgegebenen Temperatur als gesättigte Lösung vorliegt, stellt sich eine fest definierte Gleichgewichtskonzentration entsprechend dem Phasendiagramm zwischen Reduktionsmittel und Lösungsmittel ein. Mit einer entsprechenden Thermostatisierung oder Temperierung der Reduktionsmittellösung wird daher in besonders vorteilhafter Weise sowohl ihre Konzentration als auch ihre Dichte festgelegt, so daß das zu dosierende Volumen sehr genau bestimmt werden kann.

Die auf die Vorrichtung bezogene Aufgabe wird gemäß der Erfindung gelöst durch eine Vorrichtung zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas einer Verbrennungsanlage, insbesondere im Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, mit

- einer an die Verbrennungsanlage angeschlossenen Abgasleitung,
- einem Katalysator, der in der Abgasleitung angeordnet ist,
- einem Vorratsbehälter für eine Reduktionsmittellösung,
- einer mit dem Vorratsbehälter und der Abgasleitung verbundenen Dosiereinrichtung zur Dosierung der Reduktionsmittellösung in das Abgas und
- mit einem mit der Dosiereinrichtung verbundenen Kontrollsystem, welches zur bedarfsabhängigen Dosierung des Volumens der Reduktionsmittellösung unter Berücksichtigung deren Dichte ausgebildet ist.

Das Kontrollsystem ist dabei derart ausgebildet, daß es zur Kontrolle der Dichte der Reduktionsmittellösung geeignet ist. Der Begriff Kontrolle umfaßt hierbei sowohl das passive Überwachen oder Messen als auch das aktive Steuern oder Festlegen  
5 der Dichte der Reduktionsmittellösung.

Zur Kontrolle im Sinn von Überwachen umfaßt das Kontrollsystem vorteilhafterweise einen Temperatursensor, mit dem die Temperatur der Reduktionsmittellösung meßbar ist.  
10

Zur Kontrolle im Sinn von Steuern umfaßt das Kontrollsystem bevorzugt eine Temperiereinrichtung, mit der eine definierte Temperatur der Reduktionsmittellösung einstellbar ist.

15 Weitere vorteilhafte Ausgestaltung der Vorrichtung sind den auf die Vorrichtung bezogenen Unteransprüchen zu entnehmen. Die im Hinblick auf das Verfahren dargelegten Vorteile gelten sinngemäß auch für die Vorrichtung.

20 Ausführungsbeispiele der Erfindung werden im folgenden anhand der Zeichnung näher erläutert. Es zeigen:

FIG 1 eine schematische Ansicht einer Abgasreinigungsanlage, bei der die Dichte der Reduktionsmittellösung unmittelbar vor einer Dosiereinrichtung kontrolliert wird und  
25 FIG 2 ebenfalls eine Abgasreinigungsanlage in einer schematischen Ansicht, bei der die Dichte in einem Vorratsbehälter kontrolliert wird.

30 Gemäß der FIG 1 ist die Abgasreinigungsanlage mit einer Verbrennungsanlage 2 verbunden und umfaßt eine daran angeschlossene Abgasleitung 4 für bei der Verbrennung von fossilem Brennstoff anfallendes Abgas A. Das Abgas A durchströmt einen in die Abgasleitung 4 geschalteten Katalysator 6, insbesondere einen DeNOx-Katalysator. Die Verbrennungsanlage 2 ist  
35 insbesondere ein mit Luftüberschuß betriebener Verbrennungsmotor, beispielsweise ein Dieselmotor.

In das Abgas A wird vor dessen Eintritt in den Katalysator 6 eine Reduktionsmittellösung R aus einem Vorratsbehälter 8 mittels einer Dosiereinrichtung 10 eindosiert. Die Dosiereinrichtung 10 ist beispielsweise ein Ventil, mit dem das in das Abgas A zudosierte Volumen der Reduktionsmittellösung R gesteuert wird. Die Reduktionsmittellösung R wird von der Dosiereinrichtung 10 über eine an die Abgasleitung 4 angeschlossene Dosierleitung 12 und eine am Ende der Dosierleitung 12 angeordnete Düse 14 in das Abgas A eingespritzt.

10

Als Reduktionsmittellösung R wird bevorzugt eine wäßrige Harnstofflösung verwendet, aus der nach der Einbringung in das heiße Abgas A Ammoniak als Reduktionsmittel freigesetzt wird. Das Ammoniak gelangt mit dem im Abgas A befindlichen Stickoxiden in den Katalysator A und reduziert an der katalytisch aktiven Fläche die Stickoxide im wesentlichen zu Stickstoff und Wasser.

Die Reduktionsmittellösung R wird über eine Zuleitung 16 der Dosiereinrichtung 10 aus dem Vorratsbehälter 8 zugeführt. An der Zuleitung 16 ist unmittelbar vor der Dosiereinrichtung 10 eine Temperiereinrichtung 18 sowie ein Temperatursensor 20 angeordnet. Die Temperiereinrichtung 18 ist beispielsweise eine die Zuleitung 16 umfassende Heizmanschette, mit der die Temperatur der Reduktionsmittellösung R auf eine definierte Temperatur gebracht wird. Die Temperiereinrichtung 18 kann alternativ auch in der Zuleitung 16 angeordnet sein, so daß ein intensiver Kontakt zwischen Temperiereinrichtung 18 und Reduktionsmittellösung R hergestellt ist. Die Temperiereinrichtung 18 ist bevorzugt derart ausgebildet, daß die Reduktionsmittellösung R an dem der Dosiereinrichtung 10 zugewandten Ende der Temperiereinrichtung die gewünschte Temperatur aufweist und von Temperaturschwankungen in der Umgebung der Temperiereinrichtung 18 unbeeinflusst bleibt. Hierzu ist die Temperiereinrichtung 18 beispielsweise als langgestreckter Zylinder um die Zuleitung 16 ausgeführt. Die Temperierein-

richtung 18 ist bevorzugt eine elektrische Heizung, und insbesondere ein NTC-Heizelement.

5 Mit der Temperiereinrichtung 18 wird eine Temperatur der Reduktionsmittellösung R eingestellt, die beispielsweise einige Grad bis einige 10 Grad über der Umgebungstemperatur liegt. Mit der Temperiereinrichtung 18 kann die Reduktionsmittellösung alternativ auch gekühlt werden. Die einzustellende Temperatur wird dabei derart gewählt, daß eine möglichst geringe  
10 Heizleistung oder Kühlleistung und damit ein möglichst geringer Energieverbrauch erforderlich ist. Die einzustellende Temperatur kann hierzu in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur gewählt werden, die beispielsweise über einen nicht näher dargestellten Temperaturfühler ermittelt wird.

15 Der Temperiereinrichtung 18 nachfolgend ist der Temperatursensor 20 vor der Dosiereinrichtung 10 angeordnet. Mit dem Temperatursensor 20 wird die Temperatur der Reduktionsmittellösung R unmittelbar vor dem Eintritt in die Dosiereinrichtung 10 ermittelt. Als Temperatursensor 20 werden gebräuchliche Temperatursensoren verwendet, die die Temperatur möglichst schnell erfassen.

25 Wird als Temperiereinrichtung 18 ein NTC-Heizelement verwendet, so kann dies zugleich als Temperatursensor herangezogen werden. Bevorzugt wird das NTC-Heizelement in die Zuleitung 16 eingebaut, so daß ein intensiver Kontakt zwischen dem NTC-Heizelement und der Reduktionsmittellösung R besteht. Somit kann mit dem NTC-Heizelement die Reduktionsmittellösung R  
30 temperiert und ihre Temperatur gleichzeitig über eine Widerstandsmessung bestimmt werden.

Die zusätzliche Anordnung des Temperatursensors 20 zu der Temperiereinrichtung 18 ist im Hinblick auf eine hohe Dosiergenauigkeit besonders vorteilhaft. Temperiereinrichtung 18  
35 und Temperatursensor 20 können in Kombination oder einzeln verwendet werden, um die Dichte der Reduktionsmittellösung zu

kontrollieren und die Dichte bei der Bestimmung des zu dosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung R heranzuziehen.

5 Zur Steuerung des Volumens der Reduktionsmittellösung R, das pro Zeiteinheit in das Abgas A eindosiert wird, ist ein Kontrollsystem vorgesehen, daß insbesondere eine Kontrolleinheit 22, die Temperiereinrichtung 18, den Temperatursensor 20, die Dosiereinrichtung 10 sowie ein Meßglied 24 zur Bestimmung der Konzentration der Reduktionsmittellösung R umfaßt. Da bei in-  
10 stationär betriebenen Verbrennungsmotoren pro Zeiteinheit sehr unterschiedliche Mengen an Stickoxiden im Abgas A auftreten, muß sich die zudosierte Menge an Reduktionsmittel dem jeweiligen Bedarf anpassen. Der Bedarf an Reduktionsmittel wird dabei in erster Linie aus Kenndaten M des Verbrennungs-  
15 motors 2 bestimmt. Neben den Kenndaten M des Verbrennungsmotors 2 werden optional als weitere wichtige Größen Kenndaten K des Katalysators 6 an die Kontrolleinheit 22 übermittelt. Aus diesen beiden Sätzen von Kenndaten bzw. Parametern wird der aktuelle Bedarf an Reduktionsmittel abgeleitet. Die Kon-  
20 trolleinheit 22 umfaßt hierzu beispielsweise ein Speicherelement 26, in dem ein Kennfeld für die unterschiedlichen Parametersätze abgelegt ist, und aus dem die aktuell benötigte Reduktionsmittelmenge bestimmt wird.

25 Ausgehend vom Bedarf an Reduktionsmittel wird das Volumen der Reduktionsmittellösung R bestimmt, das über die Dosiereinrichtung 10 zudosiert wird. Hierzu gehen insbesondere die Konzentration C sowie die Dichte der Reduktionsmittellösung R ein. Die Konzentration C ist entweder beim Befüllen festge-  
30 legt, oder sie wird alternativ oder zusätzlich durch das Meßglied 24 ermittelt oder durch die Temperierung der Reduktionsmittellösung R definiert, sofern diese gesättigt ist.

Die Dichte der Reduktionsmittellösung R wird mit Hilfe der  
35 Kontrolleinheit 22 kontrolliert. Dabei umfaßt die Kontrolle zum einen die Messung der Temperatur der Reduktionsmittellösung R mit Hilfe des Temperatursensors 20 sowie zum anderen

die Einstellung der Temperatur der Reduktionsmittellösung R mit Hilfe der Temperiereinrichtung 18. Zur Berücksichtigung der Dichte wird vom Temperatursensor 20 ein Signal T an die Kontrolleinheit und von der Kontrolleinheit 22 ein Signal H an die Temperiereinrichtung 18 übermittelt. Aufgrund des Signals H wird die Temperiereinrichtung 18 auf eine bestimmte Temperatur eingestellt. Ausgehend von der Konzentration und der Dichte der Reduktionsmittellösung R bestimmt die Kontrolleinheit 22 das zu dosierende Volumen. Hierzu ist in dem Speicherelement 26 beispielsweise eine Kennlinie oder ein Kennlinienfeld gespeichert, das die Abhängigkeit zwischen Temperatur und Dichte wiedergibt. Das ermittelte und pro Zeiteinheit zu dosierende Volumen wird als Signal D an die Dosiereinrichtung 10 übermittelt.

Abweichend zur FIG 1 sind gemäß FIG 2 die Temperiereinrichtung 18 sowie der Temperatursensor 20 jeweils im oder am Vorratsbehälter 8 angeordnet. Bei dieser alternativen Ausführungsform können über die Zuleitung 16 zu der Dosiereinrichtung 10 Wärmeverluste auftreten. Die an der Dosiereinrichtung 10 vorliegende Temperatur der Reduktionsmittellösung R kann daher von der im Vorratsbehälter 8 gemessenen oder eingestellten Temperatur abweichen, so daß bei der Ermittlung der Dichte der Reduktionsmittellösung R eine Korrektur erforderlich ist. Um die Wärmeverluste über die Zuleitung 16 möglichst gering zu halten, ist diese vorzugsweise mit einer Isolierung 28 umgeben.

Bei dem Verfahren und bei der Vorrichtung zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas der Verbrennungsanlage 2 ist der wesentliche Gesichtspunkt die Heranziehung der Dichte der Reduktionsmittellösung R zur Ermittlung des zu dosierenden Volumens. Die Dichte wird dabei alternativ oder gleichzeitig passiv überwacht sowie aktiv beeinflusst, indem die Temperatur der Reduktionsmittellösung R ermittelt bzw. indem die Temperatur der Reduktionsmittellösung eingestellt wird. Die Dichte der Reduktionsmittellösung wird daher in zweifa-

cher Hinsicht kontrolliert, um eine möglichst hohe Dosiergenauigkeit zu erreichen und einen Schlupf an Reduktionsmittel zu verhindern.

## Patentansprüche

1. Verfahren zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas (A) einer Verbrennungsanlage (2), insbesondere im Abgas  
5 (A) eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, bei dem
  - das Abgas (A) einen Katalysator (6) durchströmt,
  - dem Abgas (A) vor Durchströmen des Katalysators (6) eine Reduktionsmittellösung (R) zudosiert und
  - 10 - die pro Zeiteinheit zu dosierende Menge des gelösten Reduktionsmittels bedarfsabhängig bestimmt wird, wobei
  - die Dichte der Reduktionsmittellösung (R) zur Bestimmung des pro Zeiteinheit zu dosierenden Volumens der Reduktionsmittellösung (R) herangezogen wird.
- 15 2. Verfahren nach Anspruch 1, bei dem die Temperatur der Reduktionsmittellösung (R) gemessen, daraus ihre Dichte abgeleitet und in Abhängigkeit der Dichte das zu dosierende Volumen der Reduktionsmittellösung (R) gesteuert wird.
- 20 3. Verfahren nach Anspruch 2, bei dem das zu dosierende Volumen aus einer Kennlinie bestimmt wird, die die Abhängigkeit zwischen Temperatur und Dichte wiedergibt.
- 25 4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei dem die Reduktionsmittellösung (R) temperiert und die Dichte eingestellt wird.
- 30 5. Verfahren nach Anspruch 4, bei dem die Temperierung mittels einer Heizung, insbesondere mittels eines sogenannten NTC-Heizelements, durchgeführt wird.
- 35 6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, bei dem die Konzentration der Reduktionsmittellösung (R) zur Bestimmung des zu dosierenden Volumens herangezogen wird.



7. Vorrichtung zur katalytischen Reduzierung von Stickoxiden im Abgas (A) einer Verbrennungsanlage (2), insbesondere im Abgas eines mit Luftüberschuß betriebenen Verbrennungsmotors, mit

- 5 - einer an die Verbrennungsanlage (2) angeschlossenen Abgasleitung (4) für das Abgas (A),
- einem Katalysator (6), der in der Abgasleitung (4) angeordnet ist,
- einem Vorratsbehälter (8) für eine Reduktionsmittellösung
- 10 (R),
- einer mit dem Vorratsbehälter (8) und der Abgasleitung (4) verbundenen Dosiereinrichtung (10) zur Dosierung der Reduktionsmittellösung (R) in das Abgas (A) und
- mit einem mit der Dosiereinrichtung (10) verbundenen Kon-
- 15 trolsystem (18 bis 26), welches zur bedarfsabhängigen Dosierung des Volumens der Reduktionsmittellösung (R) unter Berücksichtigung deren Dichte ausgebildet ist.

8. Vorrichtung nach Anspruch 7, bei der das Kontrollsystem

20 (18 bis 26) einen Temperatursensor (20) umfaßt, mit dem die Temperatur der Reduktionsmittellösung (R) meßbar ist.

9. Vorrichtung nach Anspruch 8, bei der das Kontrollsystem

(18 bis 26) ein Speicherelement (26) umfaßt, in dem eine

25 Kennlinie gespeichert ist, die die Abhängigkeit zwischen Temperatur und Dichte wiedergibt.

10. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 7 bis 9, bei der das Kontrollsystem (18 bis 26) eine Temperiereinrichtung (18) um-

30 faßt, mit der eine definierte Temperatur der Reduktionsmittellösung (R) einstellbar ist.

11. Vorrichtung nach einem der Ansprüche 7 bis 10, bei der die Temperiereinrichtung (18) eine Heizung, insbesondere ein

35 sogenanntes NTC-Heizelement, aufweist.

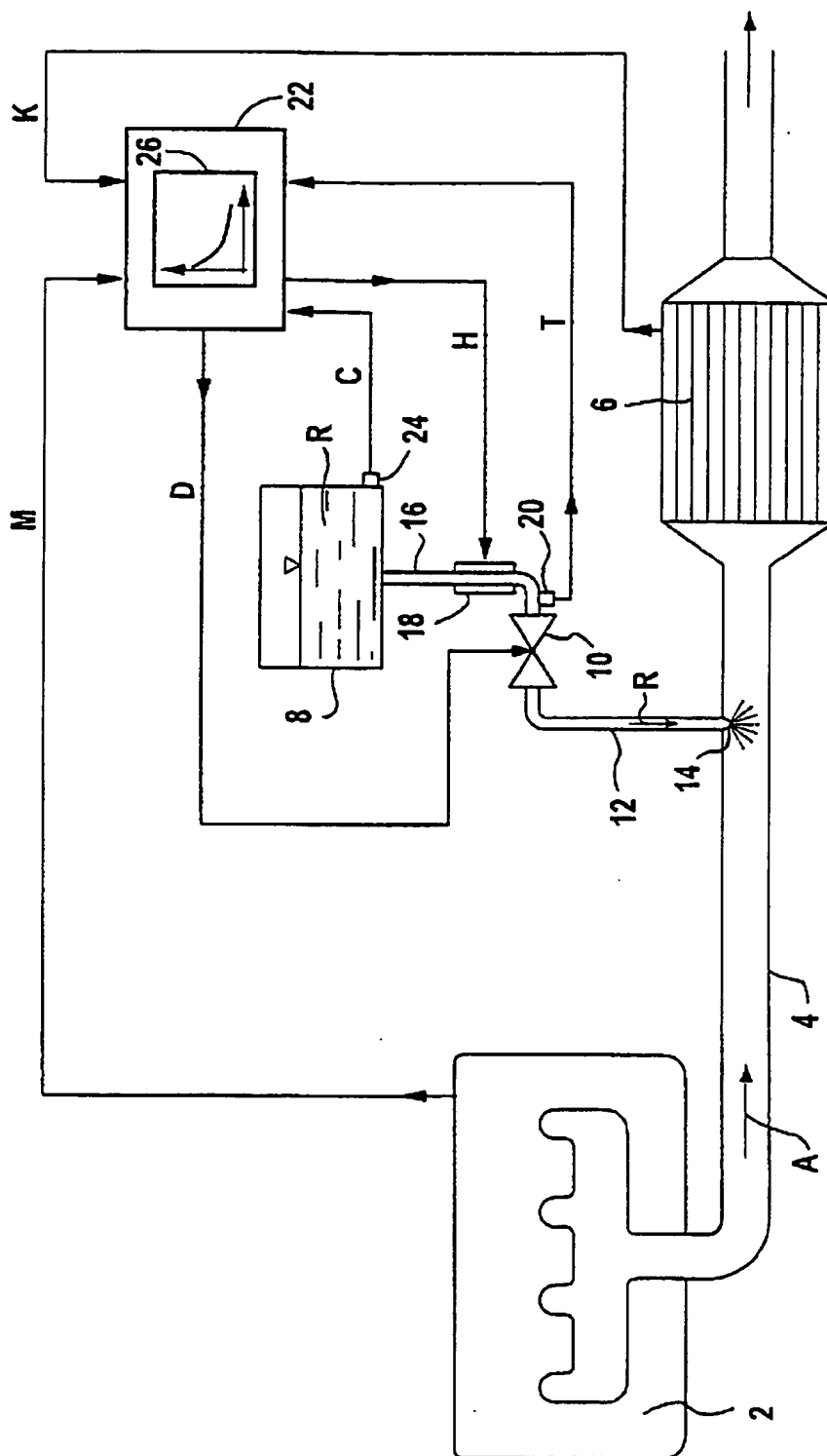
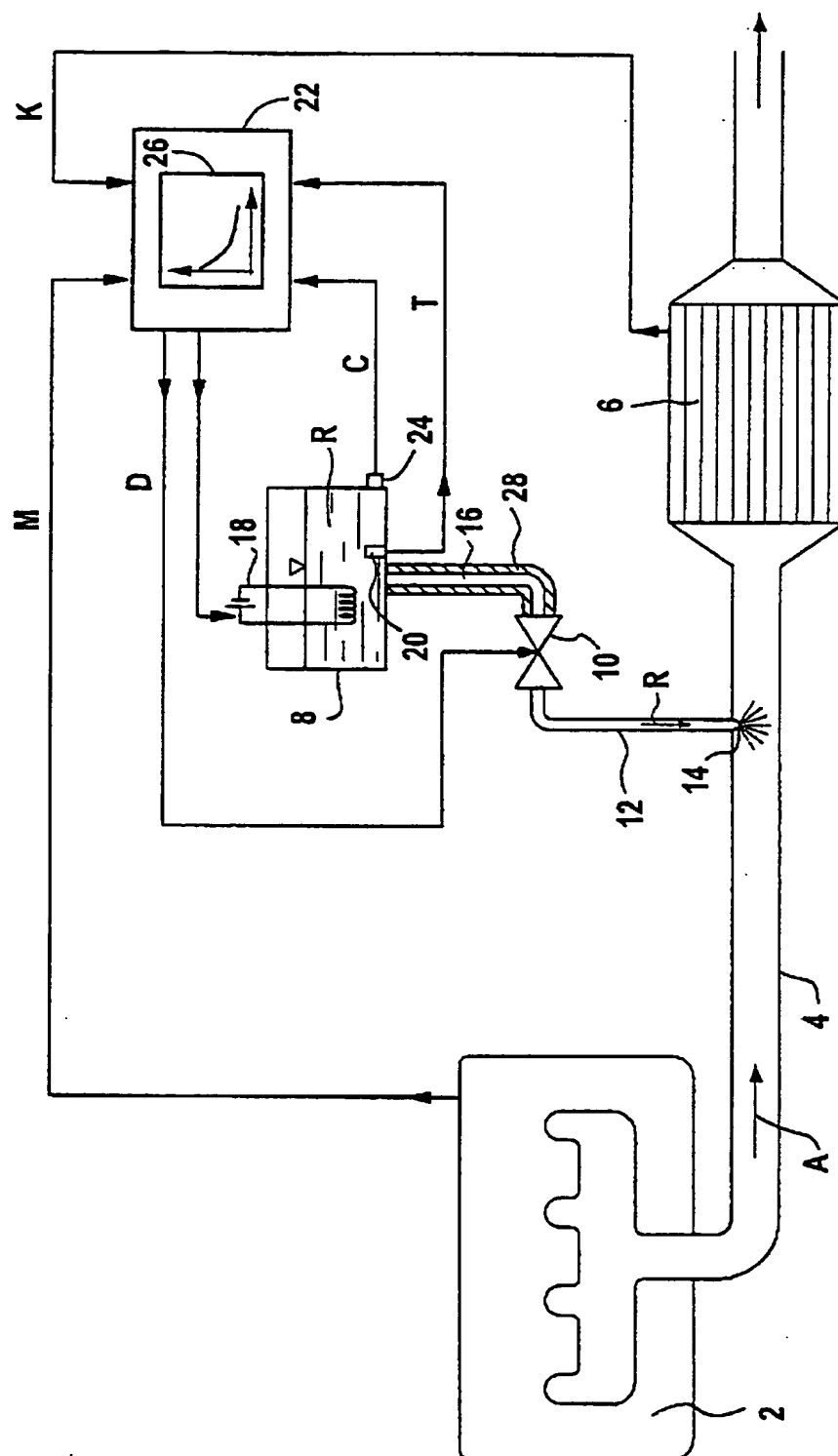


FIG 1



**FIG 2**

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

National Application No

PCT/DE 99/01097

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
IPC 6 B01D53/90 B01D53/94

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 B01D

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category * | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages  | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| P, X       | EP 0 898 061 A (MAN NUTZFAHRZEUGE AG)<br>24 February 1999 (1999-02-24)<br>column 4, paragraph 24; claims 1,8;<br>figure 1<br>column 11, line 50 - line 57 | 1-3,7-9               |
| A          | DE 44 32 577 A (SIEMENS AG)<br>14 March 1996 (1996-03-14)<br>claims 1,5; figure 1   | 10,11                 |



Further documents are listed in the continuation of box C.



Patent family members are listed in annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

8 September 1999

Date of mailing of the international search report

16/09/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Bertram, H

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/DE 99/01097

| Patent document<br>cited in search report |   | Publication<br>date | Patent family<br>member(s) |   | Publication<br>date |
|---|---|---------------------|----------------------------|---|---------------------|
| EP 898061                                 | A | 24-02-1999          | DE 19736384                | A | 25-02-1999          |
| DE 4432577                                | A | 14-03-1996          | CA 2199737                 | A | 21-03-1996          |
|   |   |                     | WO 9608639                 | A | 21-03-1996          |
|   |   |                     | EP 0839264                 | A | 06-05-1998          |
|   |   |                     | JP 9511807                 | T | 25-11-1997          |
|   |   |                     | US 5884475                 | A | 23-03-1999          |

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

nationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01097

A. KLASSTFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES  
IPK 6 B01D53/90 B01D53/94

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchiertes Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 B01D

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

| Kategorie* | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile   | Betr. Anspruch Nr. |
|------------|--|--------------------|
| P, X       | EP 0 898 061 A (MAN NUTZFAHRZEUGE AG)<br>24. Februar 1999 (1999-02-24)<br>Spalte 4, Absatz 24; Ansprüche 1,8;<br>Abbildung 1<br>Spalte 11, Zeile 50 - Zeile 57 | 1-3, 7-9           |
| A          | DE 44 32 577 A (SIEMENS AG)<br>14. März 1996 (1996-03-14)<br>Ansprüche 1,5; Abbildung 1  | 10, 11             |



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfindnerischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfindnerischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

8. September 1999

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

16/09/1999

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3018

Bevollmächtigter Bediensteter

Bertram, H

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

ationales Aktenzeichen

PCT/DE 99/01097

| Im Recherchenbericht<br>angeführtes Patentdokument |   | Datum der<br>Veröffentlichung | Mitglied(er) der<br>Patentfamilie |            | Datum der<br>Veröffentlichung |
|--|---|-------------------------------|-----------------------------------|------------|-------------------------------|
| EP 898061  | A | 24-02-1999                    | DE                                | 19736384 A | 25-02-1999                    |
| DE 4432577   | A | 14-03-1996                    | CA                                | 2199737 A  | 21-03-1996                    |
|  |   |                               | WO                                | 9608639 A  | 21-03-1996                    |
|  |   |                               | EP                                | 0839264 A  | 06-05-1998                    |
|  |   |                               | JP                                | 9511807 T  | 25-11-1997                    |
|  |   |                               | US                                | 5884475 A  | 23-03-1999                    |

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**